

This Page Is Inserted by IFW Operations  
and is not a part of the Official Record

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning documents *will not* correct images,  
please do not report the images to the  
Image Problem Mailbox.**

# PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2001-011031

(43)Date of publication of application : 16.01.2001

(51)Int.Cl.

C07C211/61 C07C217/94

C07C323/35 C07D209/86

C07D213/74 C07D263/48

C07D263/58 C07D265/38

C07D271/10 C07D277/82

C07D279/22 C07D307/66

C07D333/36 C07D333/66

C09K 11/06 H05B 33/14

H05B 33/22

(21)Application number : 11-158859

(71)Applicant :

TOYO INK MFG CO LTD

(22)Date of filing : 07.06.1999

(72)Inventor :

TAMANO MICHIKO  
MAKI SHINICHIRO

(30)Priority

Priority number : 10166459  
11117451

Priority date : 15.06.1998  
26.04.1999

Priority country : JP  
JP

**(54) COMPOUND FOR ORGANIC ELECTROLUMINESCENCE ELEMENT AND LUMINESCENT MATERIAL FOR ORGANIC ELECTROLUMINESCENCE ELEMENT USING THE SAME**

(57)Abstract:

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To obtain a novel compound useful as compound for organic electroluminescence(EL) elements having a red color-based luminescent color, a high luminescent brightness and a long emission lifetime.

**SOLUTION:** This compound for organic EL elements is a compound expressed by formula I [Ar3 to Ar10 are each a (substituted) single ring, a (substituted) multiply fused ring, a (substituted) aromatic heterocycle; Ar3 with Ar4, Ar5, with Ar6, Ar7 with Ar8, Ar9 with Ar10 may mutually bond to be integrated], e.g. the compound expressed by formula II. The compound of formula I is obtained by reacting a halogenated perylene with an aromatic diamine compound in the presence of a catalyst such as copper and the like at 200°C for a long time. An organic luminescent material for EL elements is obtained by combining the compound of formula I with a compound expressed by formula III [Pe is a perylene residue; Ar1 and Ar2 are each a (substituted) single ring, a (substituted) multiply fused ring, a (substituted) aromatic heterocycle; a is 2-12; but the compounds expressed by formula I are excepted].

Copyright (C); 1998,2000 Japan Patent Office

(19)日本国特許庁 (J P)

## (12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開2001-11031

(P2001-11031A)

(43)公開日 平成13年1月16日(2001.1.16)

(51)Int.Cl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	テマコード*(参考)
C 0 7 C 211/61		C 0 7 C 211/61	3 K 0 0 7
217/94		217/94	4 C 0 2 3
323/35		323/35	4 C 0 3 3
C 0 7 D 209/86		C 0 7 D 209/86	4 C 0 3 6
213/74		213/74	4 C 0 5 5
審査請求 未請求 請求項の数7 O L (全 35 頁) 最終頁に続く			

(21)出願番号 特願平11-158859

(22)出願日 平成11年6月7日(1999.6.7)

(31)優先権主張番号 特願平10-166459

(32)優先日 平成10年6月15日(1998.6.15)

(33)優先権主張国 日本 (J P)

(31)優先権主張番号 特願平11-117451

(32)優先日 平成11年4月26日(1999.4.26)

(33)優先権主張国 日本 (J P)

(71)出願人 000222118

東洋インキ製造株式会社

東京都中央区京橋2丁目3番13号

(72)発明者 玉野 美智子

東京都中央区京橋二丁目3番13号 東洋イ

ンキ製造株式会社内

(72)発明者 真木 伸一郎

東京都中央区京橋二丁目3番13号 東洋イ

ンキ製造株式会社内

最終頁に続く

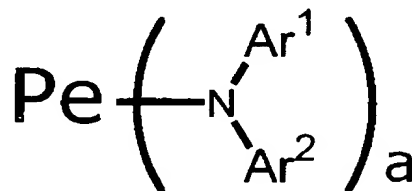
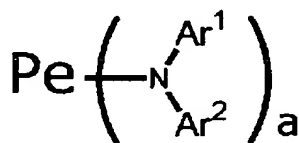
(54)【発明の名称】 有機エレクトロルミネッセンス素子用化合物およびそれを使用した有機エレクトロルミネッセンス素子用発光材料

(57)【要約】

【課題】電子注入性に優れた、発光劣化が少なく信頼性の高い有機エレクトロルミネッセンス素子を提供する。

【解決手段】下記一般式〔1〕で示される化合物からなる有機エレクトロルミネッセンス素子用発光材料。一般式〔1〕

【化1】



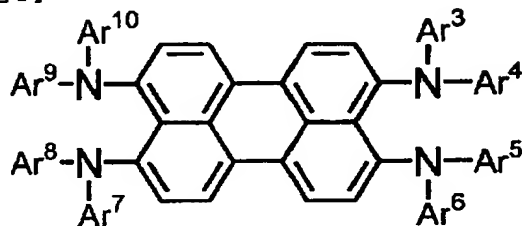
〔式中、Peはペリレン残基を表す。Ar<sup>1</sup>およびAr<sup>2</sup>は、それぞれ独立に、置換または未置換のフェニル基、置換または未置換の縮合多環基、置換または未置換の芳香族複素環基を表す (Ar<sup>1</sup>とAr<sup>2</sup>は、互いに結合して一体となっても良い)。aは2～12の整数を表す。〕

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 下記一般式〔1〕で示される有機エレクトロルミネッセンス素子用化合物。

一般式〔1〕

〔化 1〕



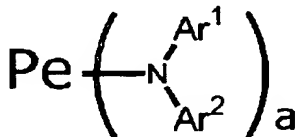
〔式中、 $Ar^3 \sim Ar^{10}$ は、それぞれ独立に、置換または未置換の単環基、置換または未置換の縮合多環基、置換または未置換の芳香族複素環基を表し、 $Ar^3$ と $Ar^4$ 、 $Ar^5$ と $Ar^6$ 、 $Ar^7$ と $Ar^8$ 、 $Ar^9$ と $Ar^{10}$ は、それぞれ互いに結合して一体となっても良い。〕

【請求項 2】 請求項 1 記載の化合物からなる有機エレクトロルミネッセンス素子用発光材料。

【請求項 3】 一般式〔1〕で示される化合物と一般式〔2〕で示される化合物との組み合わせからなる有機エレクトロルミネッセンス素子用発光材料。

一般式〔2〕

〔化 2〕



〔式中、 $Pe$ はペリレン残基を表す。 $Ar^1$ および $Ar^2$ は、それぞれ独立に、置換または未置換の単環基、置換または未置換の縮合多環基、置換または未置換の芳香族複素環基を表す（ $Ar^1$ と $Ar^2$ とは、互いに結合して一体となっても良い）。 $a$ は 2 ～ 12 の整数を表す。ただし、一般式〔1〕で表される化合物である場合を除く。〕

【請求項 4】 更に正孔注入材料もしくは電子注入材料を含んでなる請求項 2 または 3 記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用発光材料。

【請求項 5】 陽極と陰極とからなる一対の電極間に少なくとも一層の発光層を形成してなる有機エレクトロルミネッセンス素子において、発光層が請求項 2 ないし 4 いずれか記載の有機エレクトロルミネッセンス素子用発光材料を含有する層である有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 6】 さらに、発光層と陰極との間に少なくとも一層の電子注入層を形成してなる請求項 5 記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

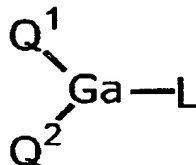
【請求項 7】 発光層または電子注入層が下記一般式

〔3〕で示される化合物を含有する層である請求項 5 ま

たは 6 記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

一般式〔3〕

〔化 3〕



10 〔式中、 $Q^1$ および $Q^2$ は、それぞれ独立に、置換もしくは未置換のヒドロキシキノリン誘導体または置換もしくは未置換のヒドロキシベンゾキノリン誘導体を表し、 $L$ は、ハロゲン原子、置換または未置換のアルキル基、置換または未置換のシクロアルキル基、置換または未置換のアリール基、置換または未置換の芳香族複素環基、 $-OR$ （ $R$ は水素原子、置換または未置換のアルキル基、置換または未置換のシクロアルキル基、置換または未置換のアリール基、置換または未置換の芳香族複素環基を表す。）、 $-O-Ga-Q^3$ （ $Q^4$ ）（ $Q^3$ および $Q^4$ は、 $Q^1$ および $Q^2$ と同じ意味を表す。）で表される配位子を表す。〕

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は平面光源や表示に使用される有機エレクトロルミネッセンス（EL）素子用発光材料および高輝度の発光素子に関するものである。

【0002】

【従来の技術】 有機物質を使用した EL 素子は、固体発光型の安価な大面積フルカラー表示素子としての用途が有望視され、多くの開発が行われている。一般に EL 素子は、発光層および該層をはさんだ一対の対向電極から構成されている。発光は、両電極間に電界が印加されると、陰極側から電子が注入され、陽極側から正孔が注入され、この電子が発光層において正孔と再結合し、エネルギー準位が伝導帯から価電子帯に戻る際にエネルギーを光として放出する現象である。

【0003】 従来の有機 EL 素子は、無機 EL 素子に比べて駆動電圧が高く、発光輝度や発光効率も低かった。また、特性劣化も著しく実用化には至っていなかった。近年、10V 以下の低電圧で発光する高い蛍光量子効率を持った有機化合物を含有した薄膜を積層した有機 EL 素子が報告され、関心を集めている（アプライド・フィジクス・レターズ、51 巻、913 ページ、1987 年参照）。この方法は、金属キレート錯体を発光層、アミン系化合物を正孔注入層に使用して、高輝度の緑色発光を得ており、6 ～ 10V の直流電圧で輝度は数 1000 ( $cd/m^2$ )、最大発光効率は 1.5 ( $lm/W$ ) を達成して、実用領域に近い性能を持っている。

【0004】 しかしながら、現在までの有機 EL 素子は、構成の改善により発光輝度は改良されているが、未

だ十分な発光輝度は有していない。また、繰り返し使用時の安定性に劣るという大きな問題を持っている。これは、例えば、トリス（8-ヒドロキシキノリナート）アルミニウム錯体等の金属キレート錯体が、電界発光時に化学的に不安定であり、陰極との密着性も悪く、短時間の発光で大きく劣化することによる。以上の理由により、青色から赤色までの発光色が得られ、高い発光輝度、発光効率を持ち、長い寿命を持つ有機EL素子の開発のために、優れた発光能力を有し、耐久性のある発光材料が望まれている。

【0005】

【発明が解決しようとする課題】本発明は、赤色系の発光色を持ち、発光輝度が高く、長い発光寿命を持つ有機EL素子用発光材料およびそれを用いた有機EL素子の提供にある。本発明者らが鋭意検討した結果、一般式

【2】で示される有機EL素子用発光材料を、発光層に使用した有機EL素子は黄色から赤色発光を示し、発光輝度および発光効率が高く、発光寿命も優れていることを見いだした。特に、一般式【1】で示される有機EL素子用化合物を、発光層に使用した有機EL素子は純赤色発光を示し、他の赤色材料を使用した素子に比べて発光輝度および発光効率が高く、発光寿命も優れていることを見いだした。また、発光層が一般式【1】で示される有機EL素子用化合物を含有する層であり、発光層と陰極との間の少なくとも一層の正孔注入層に一般式

【3】で示される化合物を含有する有機エレクトロルミネッセンス素子を作成することによりさらに有用な発光素子となることを見出した。

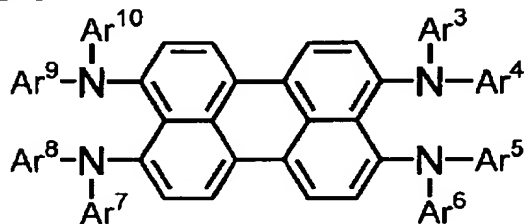
【0006】

【課題を解決するための手段】本発明は、下記一般式【1】で示される有機エレクトロルミネッセンス素子用化合物に関する。

一般式【1】

【0007】

【化4】



【0008】【式中、Ar<sup>3</sup>～Ar<sup>10</sup>は、それぞれ独立に、置換または未置換の単環基、置換または未置換の縮合多環基、置換または未置換の芳香族複素環基を表し、Ar<sup>3</sup>とAr<sup>4</sup>、Ar<sup>5</sup>とAr<sup>6</sup>、Ar<sup>7</sup>とAr<sup>8</sup>、Ar<sup>9</sup>とAr<sup>10</sup>は、それぞれ互いに結合して一体となっても良い。】

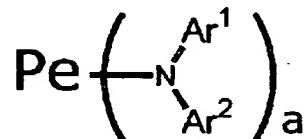
また、本発明は、上記化合物からなる有機エレクトロルミネッセンス素子用発光材料に関する。また、本発明

は、一般式【1】で示される化合物と一般式【2】で示される化合物との組み合わせからなる有機エレクトロルミネッセンス素子用発光材料に関する。

一般式【2】

【0009】

【化5】



【0010】【式中、Peはペリレン残基を表す。Ar<sup>1</sup>およびAr<sup>2</sup>は、それぞれ独立に、置換または未置換の単環基、置換または未置換の縮合多環基、置換または未置換の芳香族複素環基を表す（Ar<sup>1</sup>とAr<sup>2</sup>とは、互いに結合して一体となっても良い）。aは2～12の整数を表す。ただし、一般式【1】で表される化合物である場合を除く。】

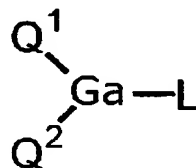
また、本発明は、更に正孔注入材料もしくは電子注入材料を含んでなる上記有機エレクトロルミネッセンス素子用発光材料に関する。また、本発明は、陽極と陰極とからなる一対の電極間に少なくとも一層の発光層を形成してなる有機エレクトロルミネッセンス素子において、発光層が上記有機エレクトロルミネッセンス素子用発光材料を含有する層である有機エレクトロルミネッセンス素子に関する。

【0011】さらに、本発明は、発光層と陰極との間に少なくとも一層の電子注入層を形成してなる上記有機エレクトロルミネッセンス素子に関する。また、本発明は、発光層または電子注入層が下記一般式【3】で示される化合物を含有する層である上記有機エレクトロルミネッセンス素子に関する。

一般式【3】

【0012】

【化6】



【0013】【式中、Q<sup>1</sup>およびQ<sup>2</sup>は、それぞれ独立に、置換もしくは未置換のヒドロキシキノリン誘導体または置換もしくは未置換のヒドロキシベンゾキノリン誘導体を表し、Lは、ハロゲン原子、置換または未置換のアルキル基、置換または未置換のシクロアルキル基、置換または未置換のアリール基、置換または未置換の芳香族複素環基、-OR（Rは水素原子、置換または未置換のアルキル基、置換または未置換のシクロアルキル基、置換または未置換のアリール基、置換または未置換の芳

10

20

30

40

50

香族複素環基を表す。)、 $-O-Ga-Q^3(Q^4)$  ( $Q^3$ および $Q^4$ は、 $Q^1$ および $Q^2$ と同じ意味を表す。)で表される配位子を表す。]

#### 【0014】

【発明の実施の形態】本発明における一般式〔2〕のPはペリレン残基を表し、一般式〔1〕および一般式〔2〕のペリレン残基は、ハロゲン原子、シアノ基、置換または未置換のアルキル基、置換または未置換のアルコキシ基、置換または未置換のアリールオキシ基、置換または未置換のアルキルチオ基、置換または未置換のアリールチオ基、置換または未置換のアリール基、置換または未置換の芳香族複素環基等に置換されても良い。

【0015】本発明の一般式〔1〕および一般式〔2〕の $Ar^1 \sim Ar^{10}$ は、それぞれ独立に、置換または未置換の単環基、置換または未置換の縮合多環基、置換または未置換の芳香族複素環基を表す。置換または未置換の単環基としては、置換基により置換されてもよいフェニル基がある。置換または未置換の縮合多環基としては、ナフチル基、アントリル基、フェナントリル基、フルオレニル基、ピレニル基、ペリレニル基、トリフェニル基等の複素環を含まない芳香族があり、置換基により置換されていてもよい。

【0016】置換または未置換の芳香族複素環基としては、ピリジニル基、ピラジニル基、ピリミジニル基、ピリダジニル基、トリアジニル基、インドリニル基、キノリル基、アクリジニル基、カルバゾリル基、フリル基、チオフェニル基、オキサゾリル基、オキサジアゾリル基、ベンゾオキサゾリル基、チアゾリル基、チアジアゾリル基、ベンゾチアゾリル基、トリアゾリル基、ベンゾトリアゾリル基、イミダゾリル基、ベンゾイミダゾリル基等の炭素数2~30の置換または未置換の芳香族複素環基がある。本芳香族複素環基は、置換基により置換されていてもよい。また、 $Ar^1$ と $Ar^2$ 、 $Ar^3$ と $Ar^4$ 、 $Ar^5$ と $Ar^6$ 、 $Ar^7$ と $Ar^8$ 、 $Ar^9$ と $Ar^{10}$ は、それぞれ互いに結合して、新たな複素環を形成しても良い。複素環としては、ピロリジン環、ジオキサラン環、ピラゾリジン環、ピペリジン環、ジオキサン環、モルフォリン環、ピペラジン環、トリチアン環等および上記芳香族複素環がある。

【0017】前記単環基に置換されてもよい置換基を以下に例示する。ハロゲン原子としてはフッ素、塩素、臭素、ヨウ素がある。置換または未置換のアルキル基としては、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、sec-ブチル基、tert-ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、ヘプチル基、オクチル基、ステアリル基、2-フェニルイソプロピル基、トリクロロメチル基、トリフルオロメチル基、ベンジル基、 $\alpha$ -フェノキシベンジル基、 $\alpha$ 、 $\alpha$ -ジメチルベンジル基、 $\alpha$ 、 $\alpha$ -メチルフェニルベンジル基、 $\alpha$ 、 $\alpha$ -ジトリフルオロメチルベンジル基、トリフェニルメチル基、 $\alpha$ -ベンジルオキシベ

ンジル基等の炭素数1~30のアルキル基の置換基がある。

【0018】置換または未置換のアルコキシ基としては、メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、n-ブトキシ基、tert-ブトキシ基、n-オクチルオキシ基、tert-オクチルオキシ基、1,1,1-テトラフルオロエトキシ基、フェノキシ基、ベンジルオキシ基、オクチルフェノキシ基等の炭素数1~20のアルコキシ基がある。置換または未置換のアルキルチオ基としては、メチルチオ基、エチルチオ基、tert-ブチルチオ基、ヘキシルチオ基、オクチルチオ基、トリフルオロメチルチオ基等がある。

【0019】置換または未置換のアリールオキシ基としては、フェノキシ基、4-ニトロフェノキシ基、tert-ブチルフェノキシ基、3-フルオロフェノキシ基、ペンタフルオロフェニル基、トリフルオロメチルフェノキシ基等がある。置換または未置換のアリールチオ基としては、フェニルチオ基、4-メチルフェニルチオ基、tert-ブチルフェニルチオ基、3-フルオロフェニルチオ基、ペンタフルオロフェニルチオ基、3-トリフルオロメチルフェニルチオ基等がある。置換または未置換のアリール基としては、一般式〔1〕または一般式〔2〕の単環基、縮合多環基があげられる。置換または未置換の芳香族複素環基としては、一般式〔1〕または一般式〔2〕で示される化合物の説明で例示したものと同様の基が例示できる。

【0020】また、前記単環基は、 $-NR^6R^7$  ( $R^6$ 、 $R^7$ は、置換または未置換のアルキル基、置換または未置換のアリール基、置換または未置換の芳香族複素環基を表す。)で置換されてもよい。その具体例としては、エチルアミノ基、ジエチルアミノ基、ジプロピルアミノ基、ジブチルアミノ基、ベンジルアミノ基、ジベンジルアミノ基、(3-メチルフェニル)アミノ基、(4-メチルフェニル)アミノ基、フェニルアミノ基、フェニルメチルアミノ基、ジフェニルアミノ基、ジトリルアミノ基、ジピリジルアミノ基、フェニルチオフェニルアミノ基、ジピフェニルアミノ基、ジ(4-メチルピフェニル)アミノ基、ジ(3-メチルフェニル)アミノ基、ジ(4-メチルフェニル)アミノ基、ナフチルフェニルアミノ基、ビス[4-( $\alpha$ 、 $\alpha'$ -ジメチルベンジル)フェニル]アミノ基等がある。

【0021】前記置換基により置換されてもよいフェニル基は、メチル基などのアルキル基、メトキシ基などのアルコキシ基、ジフェニルアミノ基で置換されていることが好ましい。

【0022】一般式〔1〕で示される化合物は赤色発光材料として有用であるが、一般式〔2〕で示される化合物との組み合わせの場合、発光色を変えることができ、有用である。その代表例としては、表1の、化合物(49)と化合物(2)、化合物(53)と化合物(63)

7

のような2種類の化合物の組み合わせが上げられる。また、3種類の化合物の組み合わせとしては、表1の、化合物(1)と化合物(2)と化合物(49)の様な異性体の組み合わせが上げられるが、これらの置換基、個数等に限定されるものではない。

【0023】一般式[1]または一般式[2]で示されるペリレン環を有している化合物は、ガラス転移点や融点が高くなり電界発光時における有機層中、有機層間または、有機層と金属電極間で発生するジュール熱に対する耐性(耐熱性)が良いので、有機EL素子の発光材料として使用した際には、高い発光輝度を示し、発光寿命に対しても有利である。本発明の化合物は、これらの置換基に限定されるものではない。

【0024】一般式[1]または一般式[2]で示される化合物は、次の方法で合成することが出来る。不活性溶媒中でハロゲン化ペリレンと芳香族ジアミン化合物とを、銅等の触媒と共に200℃で長時間反応させて、一般式[1]または一般式[2]で示される化合物を合成する。もう一つの合成法としては、アミノ化ペリレンとハロゲン化アリール誘導体を、不活性溶媒中で反応させ

8

る方法がある。触媒としては、銅粉、塩化第一銅、錫、塩化第一錫等がある。溶媒は、N,N-ジメチルホルムアミド、ジメチルスルホキシド等がある。

【0025】一般式[2]で示される化合物を、有機EL素子の発光材料に使用した場合、それぞれの素子は黄色～赤色での広い発光領域で高い発光効率を示した。さらには、本発明の材料は、300℃以上の融点を有するものが多く、最大発光輝度が高く、長寿命の素子を作製する際にも極めて有利である。また、一般式[1]で示される化合物は、特に純赤色の発光輝度が高く有用である。さらに、一般式[1]で示される化合物と一般式[2]で示される化合物との混合物の使用も推奨される。

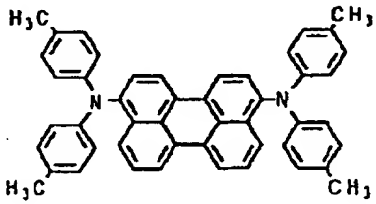
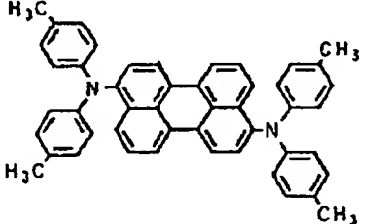
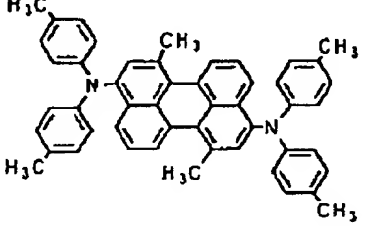
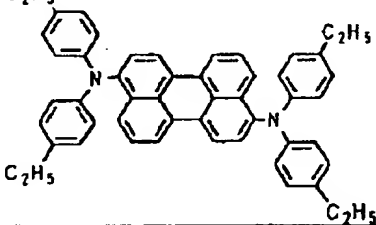
【0026】一般式[1]または一般式[2]で示される化合物の代表例を具体的に表1に例示するが、これらに限定されるものではない。これらのうちで、一般式[1]に相当する化合物は、(49)、(52)、(53)、(55)～(61)および(65)である。

【0027】

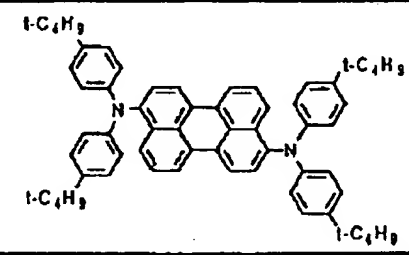
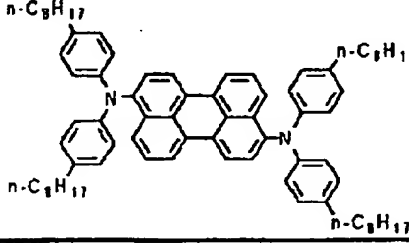
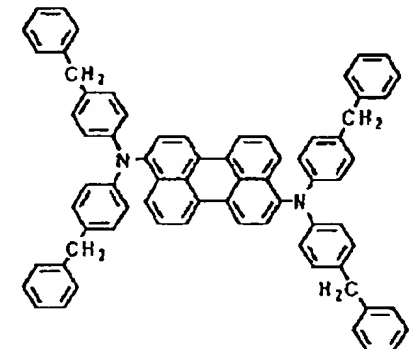
【表1】

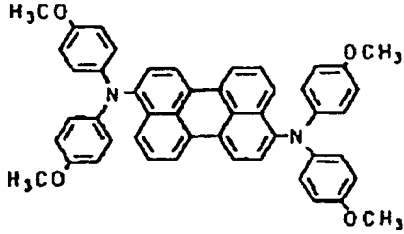
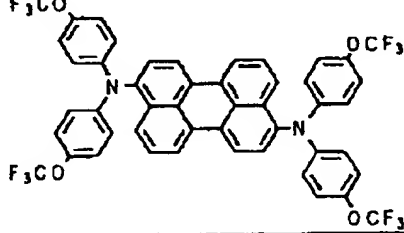
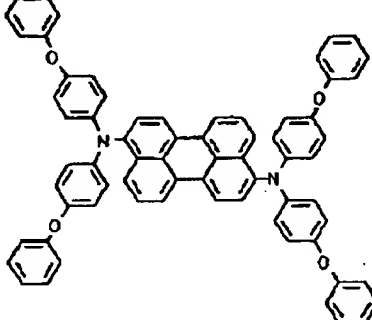
10

20

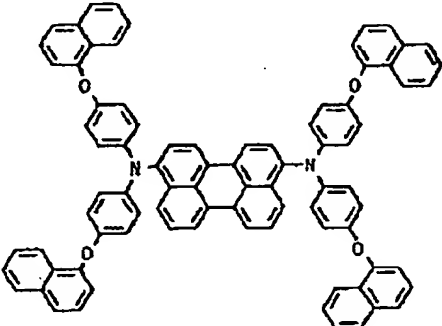
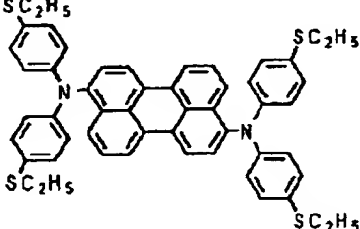
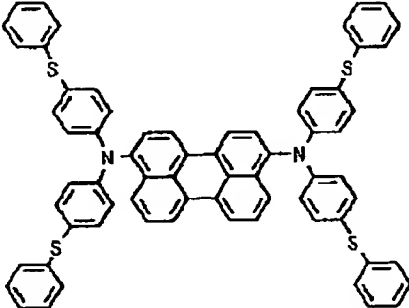
化合物	化学構造
(1)	
(2)	
(3)	
(4)	

[0028]

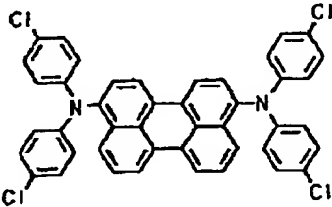
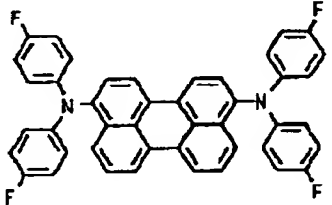
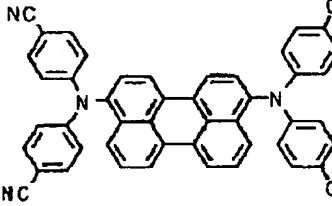
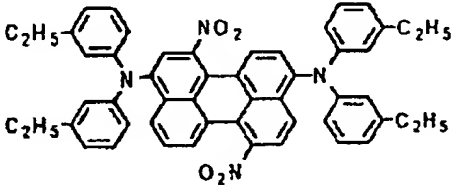
化合物	化学構造
(5)	
(6)	
(7)	

化合物	化学構造
(8)	 <chem>COc1ccc(Nc2ccc3c(c2)c4ccc5c3ccc(Nc6ccc(OC)cc6)cc45)cc1</chem>
(9)	 <chem>COc1ccc(Nc2ccc3c(c2)c4ccc5c3ccc(Nc6ccc(OCF3)cc6)cc45)cc1</chem>
(10)	 <chem>c1ccc(cc1)Oc2ccc(Nc3ccc4c(c3)c5ccc6c4ccc(Nc7ccc(Oc8ccccc8)cc7)cc56)cc2</chem>

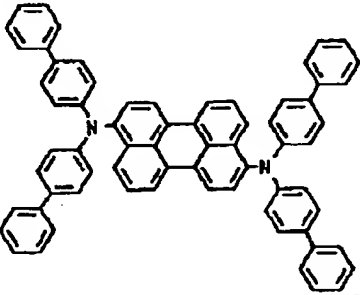
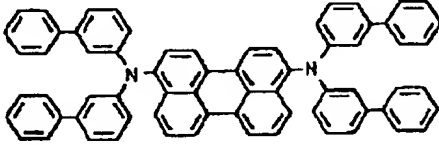
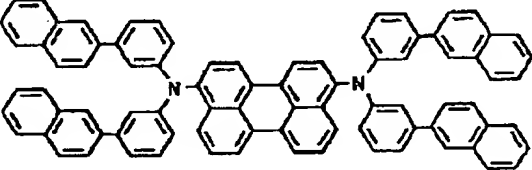
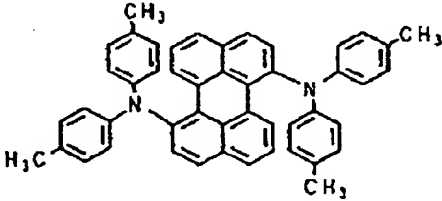
【0030】

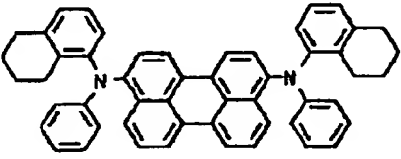
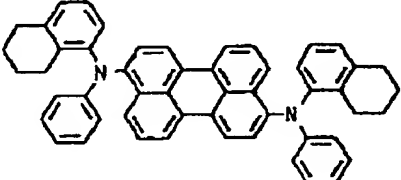
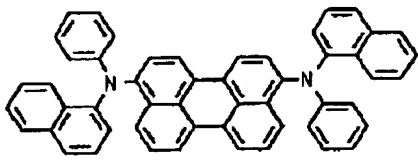
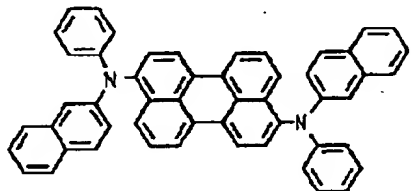
化合物	化学構造
(11)	
(12)	
(13)	

[0031]

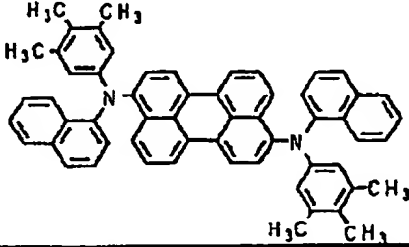
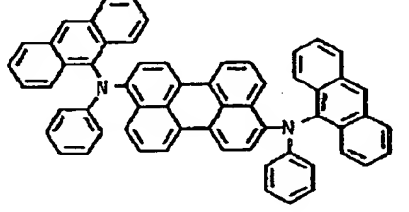
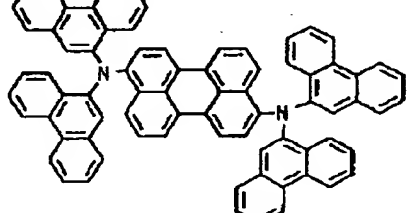
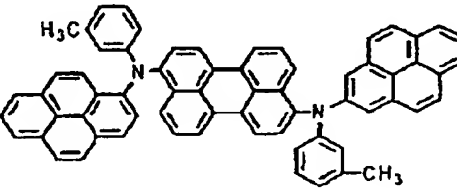
化合物	化 学 構 造
(14)	
(15)	
(16)	
(17)	

【0032】

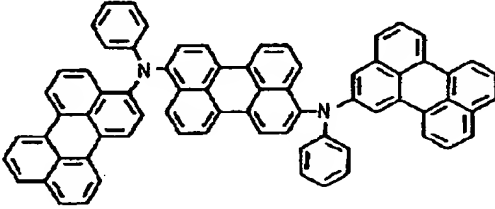
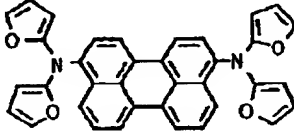
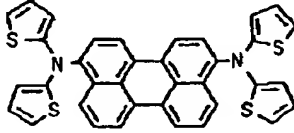
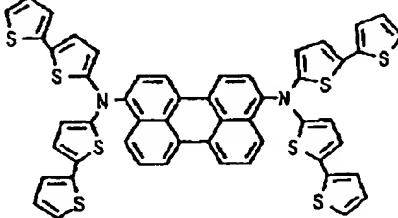
化合物	化学構造
(18)	
(19)	
(20)	
(21)	

化合物	化学構造
(22)	
(23)	
(24)	
(25)	

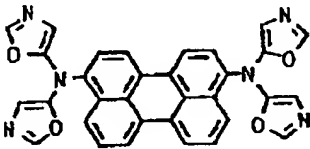
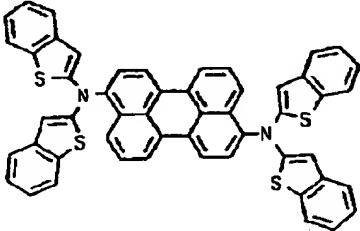
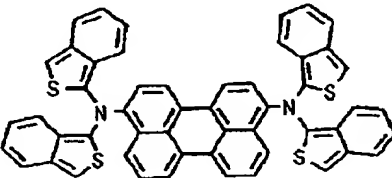
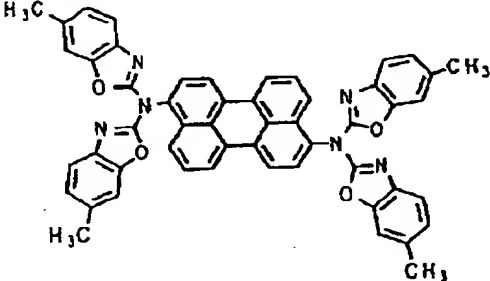
【0034】

化合物	化学構造
(26)	
(27)	
(28)	
(29)	

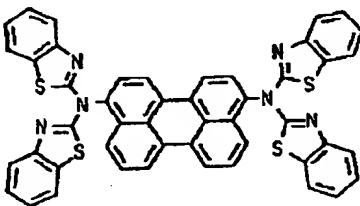
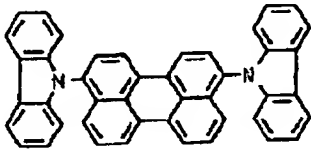
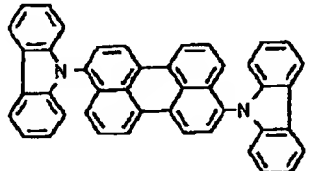
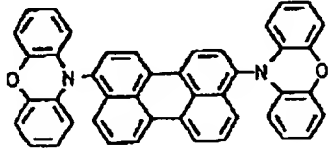
[0035]

化合物	化 学 構 造
(30)	
(31)	
(32)	
(33)	

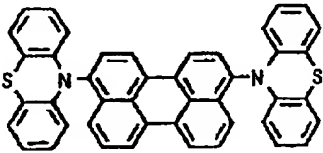
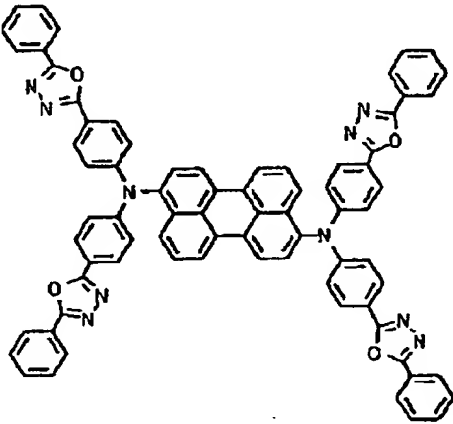
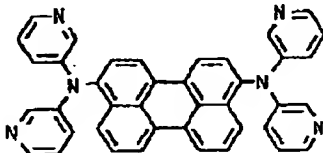
[0036]

化合物	化学構造
(34)	
(35)	
(36)	
(37)	

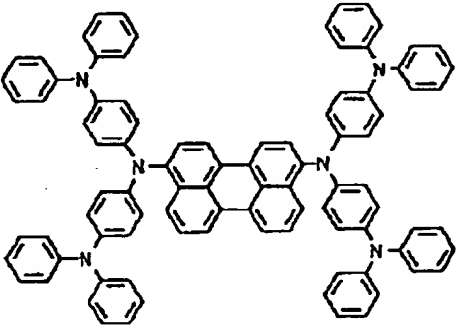
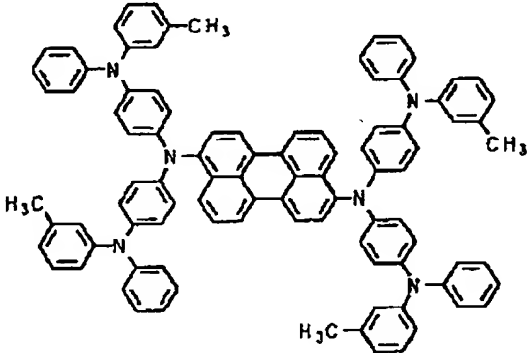
【0037】

化合物	化学構造
(38)	
(39)	
(40)	
(41)	

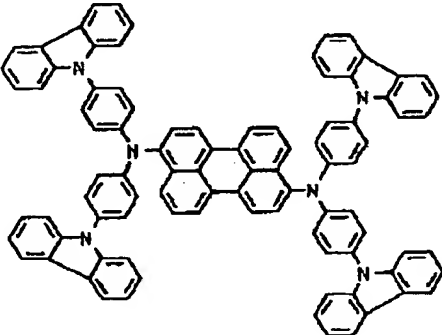
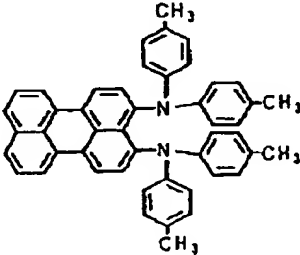
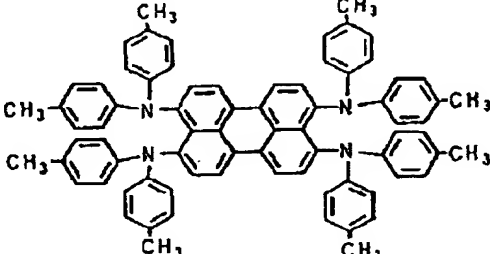
【0038】

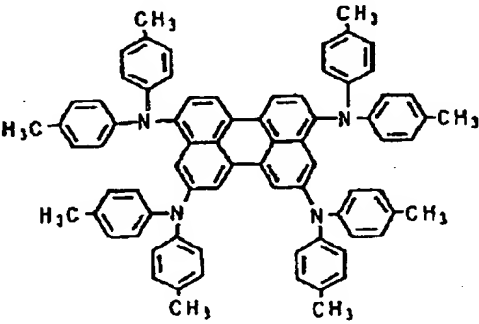
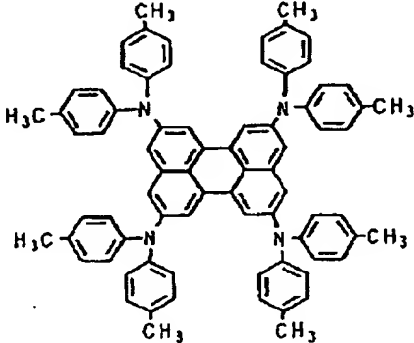
化合物	化 学 構 造
(42)	 <chem>c1ccc2c(c1)sc3ccccc3n2-c4ccc5cc6cc7ccccc7cc6cc5cc4</chem>
(43)	 <chem>c1ccc2c(c1)sc3ccccc3n2-c4ccc5cc6cc7ccccc7cc6cc5cc4-c8ccc9c(c8)nn[n+]9O-c10ccccc10</chem>
(44)	 <chem>c1ccc2c(c1)sc3ccccc3n2-c4ccc5cc6cc7ccccc7cc6cc5cc4</chem>

[0039]

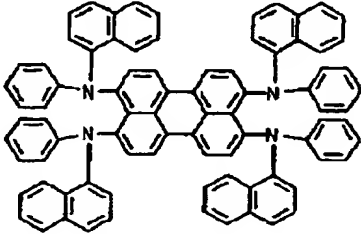
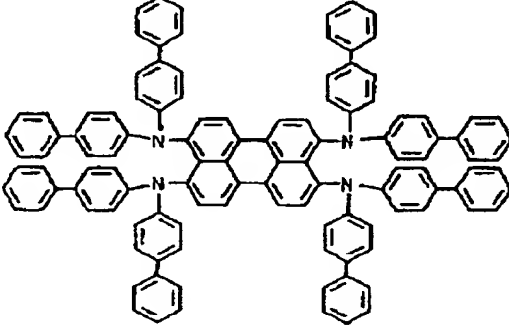
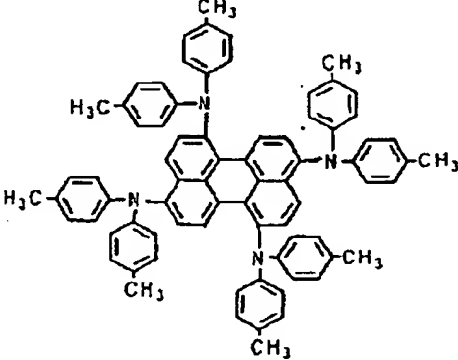
化合物	化学構造
(45)	
(46)	

[0040]

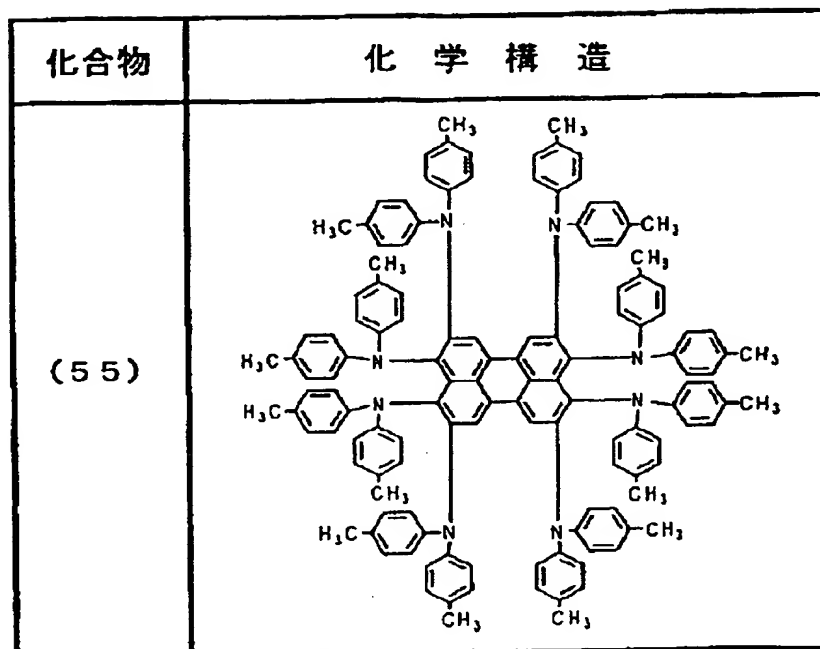
化合物	化学構造
(47)	
(48)	
(49)	

化合物	化学構造
(50)	 <p>Chemical structure of compound (50): A fluorene core substituted with four N-(4-methylphenyl)-4-methylphenyl groups at the 1, 3, 8, and 9 positions. Each substituent consists of a central nitrogen atom bonded to a 4-methylphenyl ring and a 4-methylphenyl ring.</p>
(51)	 <p>Chemical structure of compound (51): A fluorene core substituted with four N-(4-methylphenyl)-4-methylphenyl groups at the 1, 3, 8, and 9 positions. Each substituent consists of a central nitrogen atom bonded to a 4-methylphenyl ring and a 4-methylphenyl ring.</p>

[0042]

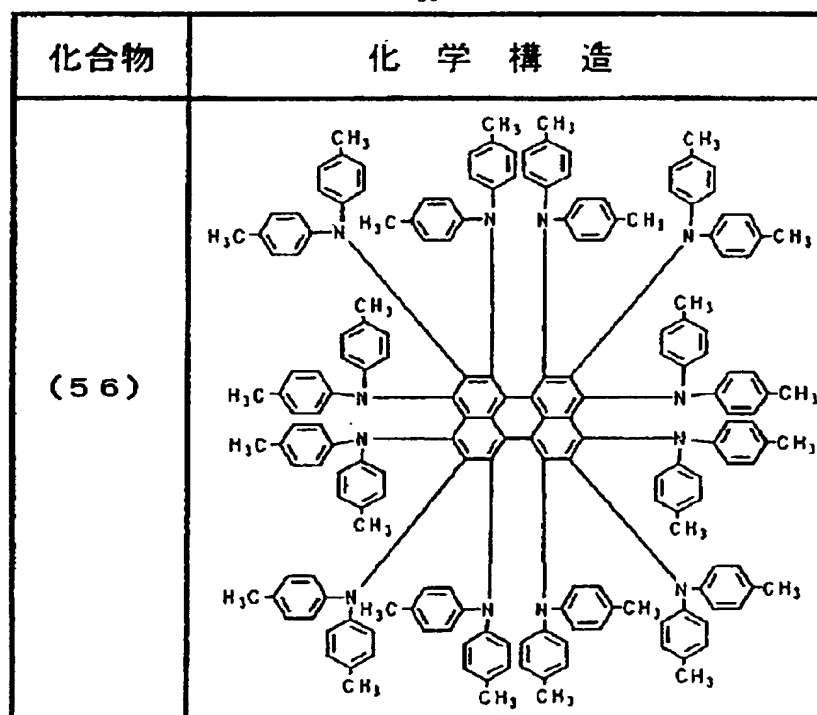
化合物	化学構造
(52)	
(53)	
(54)	

【0043】

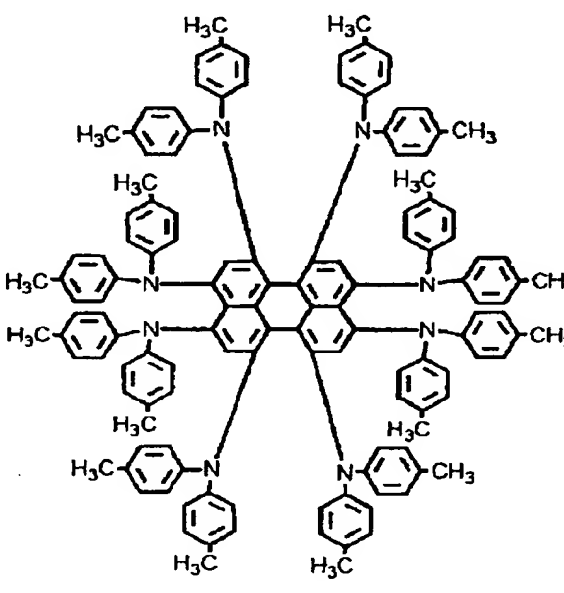
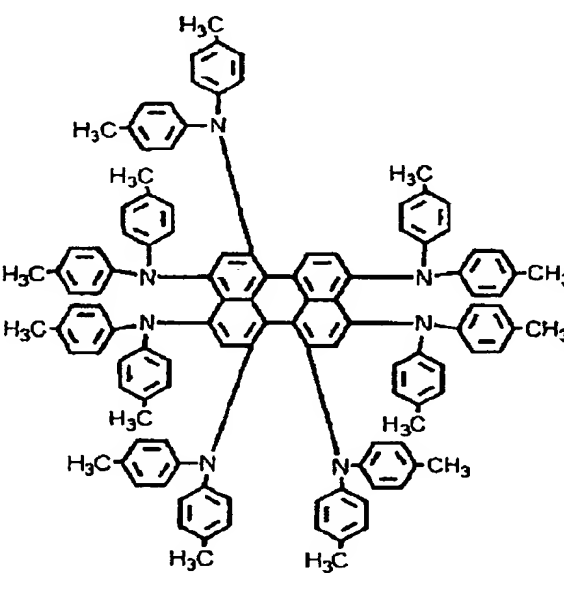


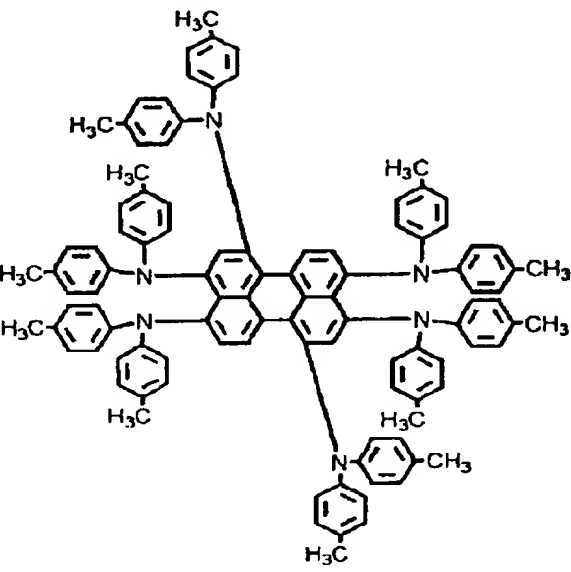
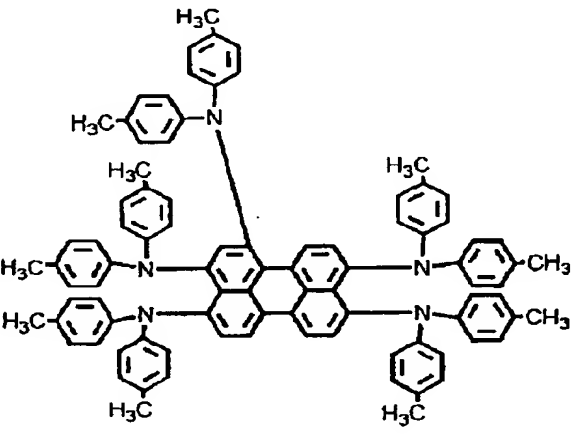
【0044】

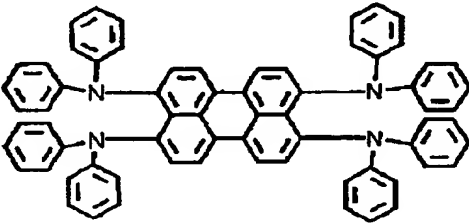
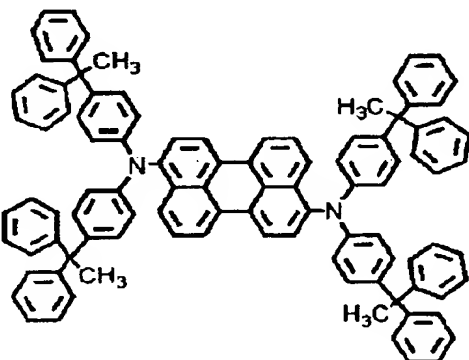
20



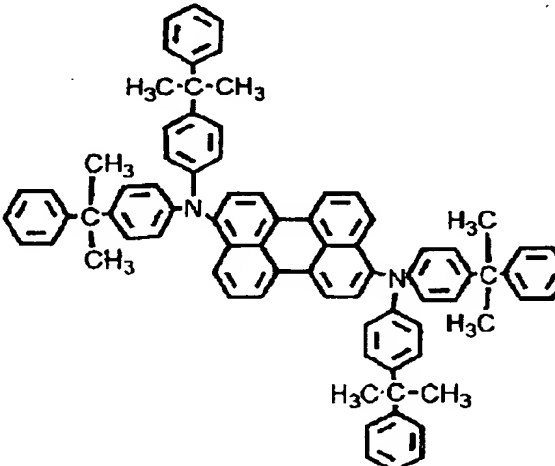
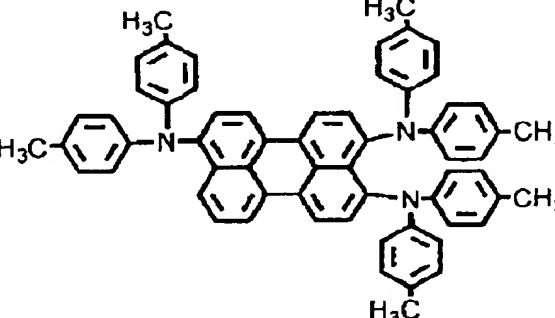
【0045】

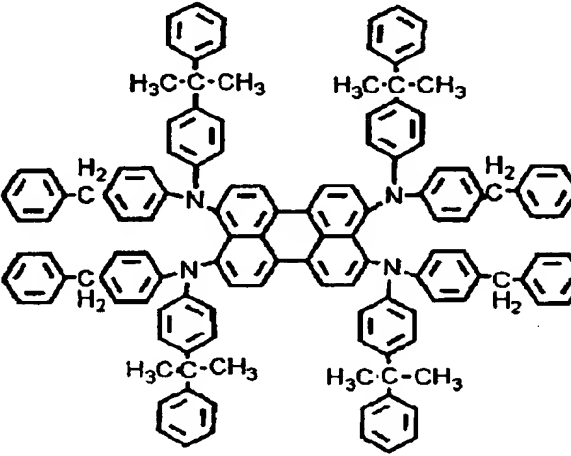
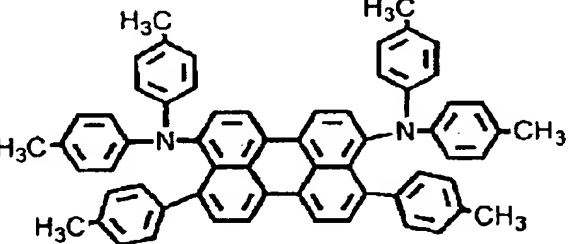
化合物	化学構造
(57)	
(58)	

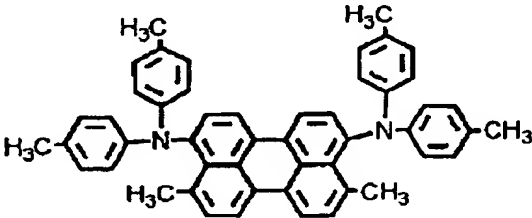
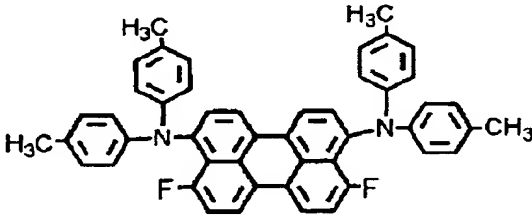
化合物	化学構造
(59)	
(60)	

化合物	化学構造
(61)	
(62)	

[0048]

化合物	化 学 構 造
( 6 3 )	 <p>Chemical structure of compound (63): A fluorene core substituted with four N-phenyl-N-(1-phenylethyl)amino groups at positions 1, 3, 6, and 9. The structure is shown as a central fluorene unit with four N-phenyl-N-(1-phenylethyl)amino groups attached at the 1, 3, 6, and 9 positions.</p>
( 6 4 )	 <p>Chemical structure of compound (64): A fluorene core substituted with four N-(4-methylphenyl)-N-phenylamino groups at positions 1, 3, 6, and 9. The structure is shown as a central fluorene unit with four N-(4-methylphenyl)-N-phenylamino groups attached at the 1, 3, 6, and 9 positions.</p>

化合物	化 学 構 造
( 6 5 )	
( 6 6 )	

化合物	化学構造
(67)	
(68)	

【0051】一般式〔3〕で示される化合物の $Q^1 \sim Q^4$ は、置換もしくは未置換のヒドロキシキノリン誘導体または置換もしくは未置換のヒドロキシベンゾキノリン誘導体である。置換基としては、一般式〔1〕または一般式〔2〕の置換基の具体例と同じである。

【0052】また、LまたはRの、ハロゲン原子、置換または未置換のアルキル基、置換または未置換のアリール基、置換または未置換の芳香族複素環基も一般式

〔1〕または一般式〔2〕の説明で示した具体例と同じである。また置換または未置換のシクロアルキル基としては、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、シクロヘプチル基、シクロオクチル基、シクロノニル基、シクロデカニル基がある。

【0053】一般式〔3〕で示される化合物の具体例としては、ビス（2-メチル-8-ヒドロキシキノリナート）（1-ナフトラート）ガリウム錯体、ビス（2-メチル-8-ヒドロキシキノリナート）（2-ナフトラート）ガリウム錯体、ビス（2-メチル-8-ヒドロキシキノリナート）（フェノラート）ガリウム錯体、ビス（2-メチル-8-ヒドロキシキノリナート）（4-シアノ-1-ナフトラート）ガリウム錯体、ビス（2、4-ジメチル-8-ヒドロキシキノリナート）（1-ナフ

トラート）ガリウム錯体、ビス（2、5-ジメチル-8-ヒドロキシキノリナート）（2-ナフトラート）ガリウム錯体、ビス（2-メチル-5-フェニル-8-ヒドロキシキノリナート）（フェノラート）ガリウム錯体、ビス（2-メチル-5-シアノ-8-ヒドロキシキノリナート）（4-シアノ-1-ナフトラート）ガリウム錯体、ビス（2-メチル-8-ヒドロキシキノリナート）クロロガリウム錯体、ビス（2-メチル-8-ヒドロキシキノリナート）（o-クレゾラート）ガリウム錯体等があるが、これらに限定されるものではない。一般式〔3〕で示される化合物の合成方法、その他の具体例に関しては、特開平10-88121号公報に詳細に示されている。

【0054】有機EL素子は、陽極と陰極間に一層または多層の有機薄膜を形成した素子である。一層型の場合、陽極と陰極との間に発光層を設けている。発光層は、発光材料を含有し、それに加えて陽極から注入した正孔または陰極から注入した電子を発光材料まで輸送させるために正孔注入材料または電子注入材料を含有しても良い。多層型は、（陽極／正孔注入層／発光層／陰極）、（陽極／発光層／電子注入層／陰極）、（陽極／正孔注入層／発光層／電子注入層／陰極）の多層構成で

積層した有機EL素子がある。本発明の一般式〔1〕で示される化合物は、固体状態において黄色から赤色の強い蛍光を持ち、電界発光性に優れているので、発光材料として使用することができる。また、一般式〔1〕の化合物は、発光層中で最適の割合でドーピングすることにより、高い発光効率および発光波長の最適な選択が可能である。発光層内において、一般式〔1〕の化合物は、ホスト材料に対して0.001重量%~50重量%の範囲で含有されていることが望ましく、更には0.01重量%~10重量%の範囲が効果的である。

【0055】ここで、正孔注入層、発光層、または電子注入層は、それぞれ二層以上で形成されても良い。

【0056】一般式〔1〕の化合物と共に発光層に使用できるホスト材料としては、キノリン金属錯体、ベンゾキノリン金属錯体、ベンゾオキサゾール金属錯体、ベンゾチアゾール金属錯体、ベンゾイミダゾール金属錯体、ベンゾトリアゾール金属錯体、イミダゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、チアジアゾール誘導体、トリアゾール誘導体等の電子輸送性材料。または、スチルベン誘導体、ブタジエン誘導体、ベンジジン型トリフェニルアミン誘導体、スチリルアミン型トリフェニルアミン誘導体、ジアミノアントラセン型トリフェニルアミン誘導体、ジアミノフェナントレン型トリフェニルアミン誘導体等の正孔輸送性材料。および、ポリビニルカルバゾール、ポリシラン等の導電性高分子の高分子材料等がある。

【0057】一般式〔1〕の化合物と共に使用できる発光材料またはドーピング材料としては、アントラセン、ナフタレン、フェナントレン、ピレン、テトラセン、コロネン、クリセン、フルオレセイン、ベリレン、フタロベリレン、ナフタロベリレン、ベリノン、フタロベリノン、ナフタロベリノン、ジフェニルブタジエン、テトラフェニルブタジエン、クマリン、オキサジアゾール、アルダジン、ビスベンゾキサゾリン、ビススチリル、ピラジン、シクロペンタジエン、キノリン金属錯体、アミノキノリン金属錯体、イミン、ジフェニルエチレン、ビニルアントラセン、ジアミノカルバゾール、ピラン、チオピラン、ポリメチン、メロシアニン、イミダゾールキレート化オキシノイド化合物、キナクリドン、ルブレン等およびそれらの誘導体がある。

【0058】発光層には、発光材料およびドーピング材料に加えて、必要があれば正孔注入材料や電子注入材料を使用することもできる。

【0059】正孔注入材料としては、正孔を注入する能力を持ち、発光層または発光材料に対して優れた正孔注入効果を有し、発光層で生成した励起子の電子注入層または電子注入材料への移動を防止し、かつ薄膜形成能の優れた化合物が挙げられる。具体的には、フタロシアニン系化合物、ナフタロシアニン系化合物、ポルフィリン系化合物、オキサジアゾール、トリアゾール、イミダゾール、イミダゾロン、イミダゾールチオン、ピラゾリン、ピラゾロン、テトラヒドロイミダゾール、オキサゾール、オキサジアゾール、ヒドラゾン、アシルヒドラゾン、ポリアリアルカン、スチルベン、ブタジエン、ベンジジン型トリフェニルアミン、スチリルアミン型トリフェニルアミン、ジアミン型トリフェニルアミン等と、それらの誘導体、およびポリビニルカルバゾール、ポリシラン、導電性ポリマー等があるが、これらに限定されるものではない。

10 【0060】本発明の有機EL素子において使用できる正孔注入材料の中で、さらに効果的な正孔注入材料は、芳香族三級アミン誘導体またはフタロシアニン誘導体である。具体的には、トリフェニルアミン、トリトリルアミン、トリルジフェニルアミン、N, N'-ジフェニル-N, N'-(3-メチルフェニル)-1, 1'-ビフェニル-4, 4'-ジアミン、N, N, N', N'-(4-メチルフェニル)-1, 1'-フェニル-4, 4'-ジアミン、N, N, N', N'-(4-メチルフェニル)-1, 1'-ビフェニル-4, 4'-ジアミン、N, N'-ジフェニル-N, N'-ジナフチル-1, 1'-ビフェニル-4, 4'-ジアミン、N, N'-(メチルフェニル)-N, N'-(4-n-ブチルフェニル)-フェナントレン-9, 10-ジアミン、N, N-ビス(4-ジ-4-トリルアミノフェニル)-4-フェニル-シクロヘキサン等、またはこれらの芳香族三級アミン骨格を有したオリゴマーまたはポリマー等があるが、これらに限定されるものではない。フタロシアニン(Pc)誘導体としては、H<sub>2</sub>Pc、CuPc、CoPc、NiPc、ZnPc、PdPc、FePc、MnPc、ClAlPc、ClGaPc、ClInPc、ClSnPc、Cl<sub>2</sub>SiPc、(HO)AlPc、(HO)GaPc、VOPc、TiOPc、MoOPc、GaPc-O-GaPc等のフタロシアニン誘導体およびナフタロシアニン誘導体等があるが、これらに限定されるものではない。

【0061】電子注入材料としては、電子を注入する能力を持ち、発光層または発光材料に対して優れた電子注入効果を有し、発光層で生成した励起子の正孔注入層または正孔注入材料への移動を防止し、かつ薄膜形成能の優れた化合物が挙げられる。例えば、キノリン金属錯体、オキサジアゾール、ベンゾチアゾール金属錯体、ベンゾオキサゾール金属錯体、ベンゾイミダゾール金属錯体、フルオレノン、アントラキノジメタン、ジフェノキノノン、チオピランジオキソド、オキサジアゾール、チアジアゾール、テトラゾール、ベリレンテトラカルボン酸、フレオレニリデンメタン、アントラキノジメタン、アントロン等とそれらの誘導体があるが、これらに限定されるものではない。また、正孔注入材料に電子受容材料を、電子注入材料に電子供与性材料を添加して増感させることもできる。

【0062】本発明の有機EL素子において、さらに効果的な電子注入材料は、金属錯体化合物または含窒素五員環誘導体である。中でも、一般式〔3〕で示される化合物は好適である。具体的には、金属錯体化合物としては、一般式〔3〕で示される化合物として例示したもの  
 の他、8-ヒドロキシキノリナートリチウム、ビス(8-ヒドロキシキノリナート)亜鉛、ビス(8-ヒドロキシキノリナート)銅、ビス(8-ヒドロキシキノリナート)マンガン、トリス(8-ヒドロキシキノリナート)アルミニウム、トリス(2-メチル-8-ヒドロキシキノリナート)アルミニウム、トリス(8-ヒドロキシキノリナート)ガリウム、ビス(10-ヒドロキシベンゾ[h]キノリナート)ベリリウム、ビス(10-ヒドロキシベンゾ[h]キノリナート)亜鉛等があるが、これらに限定されるものではない。

【0063】また、含窒素五員環誘導体としては、オキサゾール、チアゾール、オキサジアゾール、チアジアゾールまたはトリアゾール誘導体が好ましい。具体的には、2, 5-ビス(1-フェニル)-1, 3, 4-オキサゾール、ジメチルPOPOP、2, 5-ビス(1-フェニル)-1, 3, 4-チアゾール、2, 5-ビス(1-フェニル)-1, 3, 4-オキサジアゾール、2-(4'-tert-ブチルフェニル)-5-(4"-ビフェニル)-1, 3, 4-オキサジアゾール、2, 5-ビス(1-ナフチル)-1, 3, 4-オキサジアゾール、1, 4-ビス[2-(5-フェニルオキサジアゾリル)]ベンゼン、1, 4-ビス[2-(5-フェニルオキサジアゾリル)-4-tert-ブチルベンゼン]、2-(4'-tert-ブチルフェニル)-5-(4"-ビフェニル)-1, 3, 4-チアジアゾール、2, 5-ビス(1-ナフチル)-1, 3, 4-チアジアゾール、1, 4-ビス[2-(5-フェニルチアジアゾリル)]ベンゼン、2-(4'-tert-ブチルフェニル)-5-(4"-ビフェニル)-1, 3, 4-トリアゾール、2, 5-ビス(1-ナフチル)-1, 3, 4-トリアゾール、1, 4-ビス[2-(5-フェニルトリアゾリル)]ベンゼン等があるが、これらに限定されるものではない。

【0064】有機EL素子の陽極に使用される導電性材料は、4 eVより大きな仕事関数を持つものが適しており、炭素、アルミニウム、バナジウム、鉄、コバルト、ニッケル、タングステン、銀、金、白金、パラジウム等およびそれらの合金、ITO基板、NESEA基板と称される酸化スズ、酸化インジウム等の酸化金属、さらにはポリチオフェンやポリピロール等の有機導電性ポリマーが用いられる。陰極に使用される導電性材料は、4 eVより小さな仕事関数を持つものが適しており、マグネシウム、カルシウム、錫、鉛、チタニウム、イットリウム、リチウム、フッ化リチウム、ルテニウム、マンガン等およびそれらの合金が用いられる。合金としては、マグネシウム/銀、マグネシウム/インジウム、リチウム

／アルミニウム等が代表例として挙げられるが、これらに限定されるものではない。合金の比率は、加熱の温度、雰囲気、真空度により制御され適切な比率が選択される。陽極および陰極は、必要があれば二層以上の層構成により形成されていても良い。

【0065】有機EL素子では、効率良く発光させるために、少なくとも一方は素子の発光波長領域において充分透明であることが望ましい。また、基板も透明であることが望ましい。透明電極は、上記の導電性材料を使用して、蒸着やスパッタリング等の方法で所定の透光性を確保するように設定する。発光面の電極は、光透過率を10%以上にすることが望ましい。基板は、機械的、熱的強度を有し、透明であれば限定されるものではないが、例示すると、ガラス基板、ポリエチレン、ポリエーテルサルホン、ポリプロピレン等の透明性ポリマーがあげられる。

【0066】有機EL素子は、多層構造にすることにより、クエンチングによる輝度や寿命の低下を防ぐことができる。また、必要があれば、発光材料、ドーピング材料、キャリア注入を行う正孔注入材料や電子注入材料を二種類以上組み合わせ使用することも出来る。また、正孔注入層、発光層、電子注入層は、それぞれ二層以上の層構成により形成されても良く、正孔または電子が効率よく電極から注入され、層中で輸送される素子構造が選択される。

【0067】本発明に係わる有機EL素子の各層の形成は、真空蒸着、スパッタリング、プラズマ、イオンプレーティング等の乾式成膜法やスピンコーティング、ディッピング、フローコーティング等の湿式成膜法のいずれかの方法を適用することができる。膜厚は特に限定されるものではないが、各層は適切な膜厚に設定する必要がある。膜厚が厚すぎると、一定の光出力を得るために大きな印加電圧が必要になり効率が悪くなる。膜厚が薄すぎるとピンホール等が発生して、電界を印加しても十分な発光輝度が得られない。通常膜厚は1 nmから1 μmの範囲が適しているが、10 nmから0.2 μmの範囲がさらに好ましい。

【0068】湿式成膜法の場合、各層を形成する材料を、クロロホルム、テトラヒドロフラン、ジオキサン等の適切な溶媒に溶解または分散して薄膜を形成するが、その溶媒はいずれであっても良い。また、いずれの薄膜においても、成膜性向上、膜のピンホール防止等のため適切なポリマーや添加剤を使用しても良い。このようなポリマーとしては、ポリスチレン、ポリカーボネート、ポリアリレート、ポリエステル、ポリアミド、ポリウレタン、ポリスルホン、ポリメチルメタクリレート、ポリメチルアクリレート、セルロース等の絶縁性ポリマー、ポリ-N-ビニルカルバゾール、ポリシラン等の光導電性ポリマー、ポリチオフェン、ポリピロール等の導電性ポリマーを挙げることができる。また、添加剤とし

ては、酸化防止剤、紫外線吸収剤、可塑剤等を挙げることができる。

【0069】本有機EL素子においては、発光層中に、一般式〔1〕または一般式〔2〕の化合物の他に、発光材料、ドーピング材料、正孔注入材料および電子注入材料の少なくとも1種が同一層に含有されてもよい。また、本発明により得られた有機EL素子の、温度、湿度、雰囲気等に対する安定性の向上のために、素子の表面に保護層を設けたり、シリコンオイル、ポリマー等により素子全体を保護することも可能である。

【0070】以上のように、有機EL素子の発光層に本発明の化合物を用い、更には特定の正孔注入層または電子注入層と組み合わせることにより、発光効率、最大発光輝度等の有機EL素子特性を改良することができた。また、この素子は熱や電流に対して非常に安定であり、さらには低い駆動電圧で実用的に使用可能な発光輝度が得られるため、従来まで大きな問題であった劣化も大幅に低下させることができた。

【0071】本発明の有機EL素子は、壁掛けテレビ等のフラットパネルディスプレイや、平面発光体として、複写機やプリンター等の光源、液晶ディスプレイや計器類等の光源、表示板、標識灯等へ応用が考えられ、その工業的価値は非常に大きい

【0072】

【実施例】以下、本発明を実施例に基づきさらに詳細に説明する。

#### 化合物(1)の合成方法

ニトロベンゼン20ml中に、3,10-ジアミノペリレン5g、4-メチル-ヨードベンゼン45g、および水酸化ナトリウム28g、塩化第一銅0.5gを入れ、200℃で50時間加熱撹拌した。その後、500mlの水で希釈し、酢酸エチルで抽出、濃縮して、シリカゲルを用いたカラムクロマトグラフィーにより精製を行ない赤色の蛍光を有する粉末3gを得た。FD-MSによる分子量分析、NMRスペクトル等の分析により、化合物(1)であることを確認した。

#### 【0073】化合物(2)の合成方法

1,3-ジメチル-2-イミダゾリジノン50ml中に、3,9-ジプロモペリレン6.5g、p,p'-ジトリルアミン16.2g、および炭酸カリウム12g、銅粉0.5gを入れ、200℃で50時間加熱撹拌した。その後、500mlの水で希釈し、酢酸エチルで抽出、濃縮して、シリカゲルを用いたカラムクロマトグラフィーにより精製を行ない赤色の蛍光を有する粉末12gを得た。FD-MSによる分子量分析、NMRスペクトル等の分析により、化合物(2)であることを確認した。この化合物の赤外吸収スペクトル(KBr錠剤法)を図1に示す。

#### 【0074】化合物(24)の合成方法

1,3-ジメチル-2-イミダゾリジノン50ml中

に、3,10-ジプロモペリレン5.5g、2-ナフチル-フェニルアミン12.2g、および炭酸カリウム8g、銅粉0.5gを入れ、200℃で50時間加熱撹拌した。その後、500mlの水で希釈し、酢酸エチルで抽出、濃縮して、シリカゲルを用いたカラムクロマトグラフィーにより精製を行ない橙色の蛍光を有する粉末13gを得た。FD-MSによる分子量分析、NMRスペクトル等の分析により、化合物(24)であることを確認した。

#### 10 【0075】化合物(49)の合成方法

1,3-ジメチル-2-イミダゾリジノン100ml中に、3,4,9,10-テトラプロモペリレン10.5g、p,p'-ジトリルアミン36.2g、および炭酸カリウム16g、銅粉1.0gを入れ、200℃で50時間加熱撹拌した。その後、500mlの水で希釈し、酢酸エチルで抽出、濃縮して、シリカゲルを用いたカラムクロマトグラフィーにより精製を行ない赤色の蛍光を有する粉末8gを得た。FD-MSによる分子量分析、NMRスペクトル等の分析により、化合物(49)であることを確認した。この化合物の赤外吸収スペクトル(KBr錠剤法)を図2に示す。

【0076】以下に本発明の化合物を用いた実施例を示す。本例では、電極面積2mm×2mmの有機EL素子の特性を測定した。

#### 【0077】実施例1

洗浄したITO電極付きガラス板上に、化合物(53)を塩化メチレンに溶解させ、スピンコーティング法により膜厚50nmの正孔注入型発光層を得た。次いで、ビス(2-メチル-8-ヒドロキシキノリナート)(1-ナフトラート)ガリウム錯体を真空蒸着して膜厚40nmの電子注入層を作成し、その上に、マグネシウムと銀を10:1(重量比)で混合した合金で膜厚100nmの電極を形成して有機EL素子を得た。発光層および電子注入層は $10^{-6}$ Torrの真空中で、基板温度室温の条件下で蒸着した。この素子は、直流電圧5Vでの発光輝度150(c d/m<sup>2</sup>)、最大発光輝度2200(c d/m<sup>2</sup>)、発光効率0.40(lm/W)の赤色発光が得られた。

#### 【0078】実施例2

40 洗浄したITO電極付きガラス板上に、4,4'-ビス[N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ]ピフェニル( $\alpha$ -NPD)を真空蒸着して膜厚30nmの正孔注入層を形成した。次いで、発光材料として化合物(49)を真空蒸着して膜厚30nmの発光層を得た。次いで、ビス(2-メチル-8-ヒドロキシキノリナート)(フェノラート)ガリウム錯体を真空蒸着して膜厚30nmの電子注入層を作成し、その上に、マグネシウムと銀を10:1(重量比)で混合した合金で膜厚100nmの電極を形成して有機EL素子を得た。正孔注入層および発光層は $10^{-6}$ Torrの真空中で、基板温度室温

の条件下で蒸着した。この素子は、直流電圧 5 V での発光輝度 200 ( $\text{cd}/\text{m}^2$ )、最大発光輝度 5000 ( $\text{cd}/\text{m}^2$ )、発光効率 0.8 ( $\text{lm}/\text{W}$ ) の赤色発光が得られた。

#### 【0079】実施例 3

洗浄した ITO 電極付きガラス板上に、4, 4', 4"-トリス [N-(3-メチルフェニル)-N-フェニルアミノ] トリフェニルアミンを真空蒸着して、膜厚 40 nm の正孔注入層を得た。次いで、 $\alpha$ -NPD を真空蒸着して、膜厚 10 nm の第二正孔注入層を得た。さらに、化合物 (61) を真空蒸着して、膜厚 30 nm の発光層を作成し、さらにビス (2-メチル-8-ヒドロキシキノリナート) (1-フェノラート) ガリウム錯体を真空蒸着して膜厚 30 nm の電子注入層を作成し、その上に、アルミニウムとリチウムを 25:1 (重量比) で混合した合金で膜厚 150 nm の電極を形成して、有機 EL 素子を得た。正孔注入層および発光層は  $10^{-6}$  Torr の真空中で、基板温度室温の条件下で蒸着した。この素子は、直流電圧 5 V での発光輝度 210 ( $\text{cd}/\text{m}^2$ )、最大発光輝度 4000 ( $\text{cd}/\text{m}^2$ )、発光効率 0.6 ( $\text{lm}/\text{W}$ ) の赤色発光が得られた。

#### 【0080】実施例 4

洗浄した ITO 電極付きガラス板上に、4, 4'-ビス [N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ] ビフェニル ( $\alpha$ -NPD) を真空蒸着して膜厚 30 nm の正孔注入層を形成した。次いで、発光材料として化合物 (65) を真空蒸着して膜厚 30 nm の発光層を得た。次いで、トリス (8-ヒドロキシキノリナート) アルミニウム錯体を真空蒸着して膜厚 30 nm の電子注入層を作成し、その上に、マグネシウムと銀を 10:1 (重量比) で混合した合金で膜厚 100 nm の電極を形成して有機 EL 素子を得た。正孔注入層および発光層は  $10^{-6}$  Torr の真空中で、基板温度室温の条件下で蒸着した。この素子は、直流電圧 5 V での発光輝度 150 ( $\text{cd}/\text{m}^2$ )、最大発光輝度 4000 ( $\text{cd}/\text{m}^2$ )、発光効率 0.6 ( $\text{lm}/\text{W}$ ) の赤色発光が得られた。

#### 【0081】実施例 5

洗浄した ITO 電極付きガラス板上に、4, 4', 4"-トリス [N-(3-メチルフェニル)-N-フェニルアミノ] トリフェニルアミンを真空蒸着して、膜厚 40 nm の正孔注入層を得た。次いで、 $\alpha$ -NPD を真空蒸着して、膜厚 10 nm の第二正孔注入層を得た。さらに、化合物 (53) を真空蒸着して、膜厚 30 nm の発光層を作成し、さらにビス (2-メチル-8-ヒドロキシキノリナート) (1-フェノラート) ガリウム錯体を真空蒸着して膜厚 30 nm の電子注入層を作成し、その上に、アルミニウムとリチウムを 25:1 (重量比) で混合した合金で膜厚 150 nm の電極を形成して、有機 EL 素子を得た。正孔注入層および発光層は  $10^{-6}$  Torr の真空中で、基板温度室温の条件下で蒸着した。こ

の素子は、直流電圧 5 V での発光輝度 250 ( $\text{cd}/\text{m}^2$ )、最大発光輝度 7000 ( $\text{cd}/\text{m}^2$ )、発光効率 0.7 ( $\text{lm}/\text{W}$ ) の赤色発光が得られた。

#### 【0082】実施例 6

洗浄した ITO 電極付きガラス板上に、4, 4'-ビス [N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ] ビフェニル ( $\alpha$ -NPD) を真空蒸着して膜厚 30 nm の正孔注入層を形成した。次いで、化合物 (2): 化合物 (49) を 100:3 (重量比) の割合で蒸着した膜厚 30 nm の発光層を得た。次いで、ビス (2-メチル-8-ヒドロキシキノリナート) (フェノラート) ガリウム錯体を真空蒸着して膜厚 30 nm の電子注入層を作成し、その上に、マグネシウムと銀を 10:1 (重量比) で混合した合金で膜厚 100 nm の電極を形成して有機 EL 素子を得た。正孔注入層および発光層は  $10^{-6}$  Torr の真空中で、基板温度室温の条件下で蒸着した。この素子は、直流電圧 5 V での発光輝度 500 ( $\text{cd}/\text{m}^2$ )、最大発光輝度 8100 ( $\text{cd}/\text{m}^2$ )、発光効率 0.9 ( $\text{lm}/\text{W}$ ) の赤色発光が得られた。

#### 【0083】実施例 7

発光層として、化合物 (63): 化合物 (61) を 100:5 (重量比) の割合で蒸着した膜厚 30 nm の薄膜を設ける以外は、実施例 6 と同様の方法で有機 EL 素子を作製した。この素子は、直流電圧 5 V での発光輝度 340 ( $\text{cd}/\text{m}^2$ )、最大発光輝度 7500 ( $\text{cd}/\text{m}^2$ )、発光効率 1.0 ( $\text{lm}/\text{W}$ ) の赤色発光が得られた。

#### 【0084】実施例 8

発光層として、化合物 (49):  $\alpha$ -NPD を 5:100 (重量比) の割合で蒸着した膜厚 30 nm の薄膜を設ける以外は、実施例 6 と同様の方法で有機 EL 素子を作製した。この素子は、直流電圧 5 V での発光輝度 420 ( $\text{cd}/\text{m}^2$ )、最大発光輝度 12000 ( $\text{cd}/\text{m}^2$ )、発光効率 1.1 ( $\text{lm}/\text{W}$ ) の赤色発光が得られた。

#### 【0085】実施例 9

発光層として、化合物 (53): ビス (2-メチル-8-ヒドロキシキノリナート) (フェノラート) ガリウム錯体を 1:100 (重量比) の割合で蒸着した膜厚 30 nm の薄膜を設ける以外は、実施例 6 と同様の方法で有機 EL 素子を作製した。この素子は、直流電圧 5 V での発光輝度 450 ( $\text{cd}/\text{m}^2$ )、最大発光輝度 14000 ( $\text{cd}/\text{m}^2$ )、発光効率 1.3 ( $\text{lm}/\text{W}$ ) の赤色発光が得られた。

#### 【0086】実施例 10

発光層として、化合物 (32): 化合物 (49) を 100:1 (重量比) の割合で蒸着した膜厚 30 nm の薄膜を設ける以外は、実施例 6 と同様の方法で有機 EL 素子を作製した。この素子は、直流電圧 5 V での発光輝度 380 ( $\text{cd}/\text{m}^2$ )、最大発光輝度 8500 ( $\text{cd}/\text{m}^2$ )、

m<sup>2</sup>）、発光効率 0.9 (lm/W) の赤色発光が得られた。

#### 【0087】実施例 11

発光層として、化合物 (35) : 化合物 (49) を 10 : 3 (重量比) の割合で蒸着した膜厚 30 nm の薄膜を設ける以外は、実施例 6 と同様の方法で有機 EL 素子を作製した。この素子は、直流電圧 5 V での発光輝度 550 (cd/m<sup>2</sup>) 最大発光輝度 9500 (cd/m<sup>2</sup>)、発光効率 0.9 (lm/W) の赤色発光が得られた。

#### 【0088】実施例 12

発光層として、化合物 (42) : 化合物 (53) を 10 : 3 (重量比) の割合で蒸着した膜厚 30 nm の薄膜を設ける以外は、実施例 6 と同様の方法で有機 EL 素子を作製した。この素子は、直流電圧 5 V での発光輝度 600 (cd/m<sup>2</sup>) 最大発光輝度 12500 (cd/m<sup>2</sup>)、発光効率 1.1 (lm/W) の赤色発光が得られた。

#### 【0089】実施例 13

発光層として、化合物 (40) : 化合物 (61) を 10 : 3 (重量比) の割合で蒸着した膜厚 30 nm の薄膜を設ける以外は、実施例 6 と同様の方法で有機 EL 素子を作製した。この素子は、直流電圧 5 V での発光輝度 500 (cd/m<sup>2</sup>) 最大発光輝度 10500 (cd/m<sup>2</sup>)、発光効率 1.0 (lm/W) の赤色発光が得られた。

#### 【0090】比較例 1

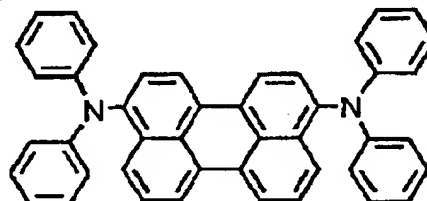
洗浄した ITO 電極付きガラス板上に、化合物 (69) を真空蒸着して膜厚 50 nm の正孔注入型発光層を得た。次いで、トリス (8-ヒドロキシキノリナート) アルミニウム錯体 (Alq3) を蒸着して膜厚 30 nm の電子注入層を作成し、その上に、マグネシウムと銀を 10 : 1 (重量比) で混合した合金で膜厚 100 nm の電極を形成して有機 EL 素子を得た。発光層および電子注

入層は 10<sup>-6</sup> Torr の真空中で、基板温度室温の条件下で蒸着した。この素子は、直流電圧 5 V での発光輝度 100 (cd/m<sup>2</sup>)、最大発光輝度 2200 (cd/m<sup>2</sup>)、発光効率 0.2 (lm/W) の黄色発光が得られ、その発光面は斑が見られ、発光寿命は数時間であった。

#### 【0091】化合物 [69]

#### 【0092】

#### 【化 7】



【0093】本実施例で示された有機 EL 素子は、二層型以上の素子構成において、全て高い発光効率を得ることができた。本実施例で示された有機 EL 素子について、3 (mA/cm<sup>2</sup>) で連続発光させたところ、1000 時間以上安定な発光を観測することができた。本発明の有機 EL 素子は発光効率、発光輝度の向上と長寿命化を達成するものであり、併せて使用される発光材料、ドーピング材料、正孔注入材料、電子注入材料、増感剤、樹脂、電極材料等および素子作製方法を限定するものではない。

#### 【0094】

【発明の効果】本発明の有機 EL 素子材料を発光材料として使用した有機 EL 素子は、赤色で発光し、従来に比べて高い発光効率で高輝度であり、長い発光寿命を持つ有機 EL 素子を得ることができた。

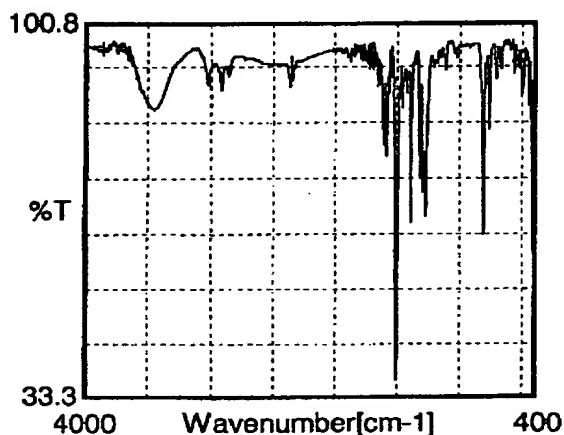
#### 【図面の簡単な説明】

【図 1】化合物 (1) の赤外線吸収スペクトル図

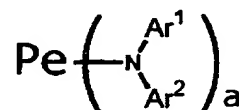
【図 2】化合物 (49) の赤外線吸収スペクトル図

【図 3】本発明の代表的な化合物の一般式

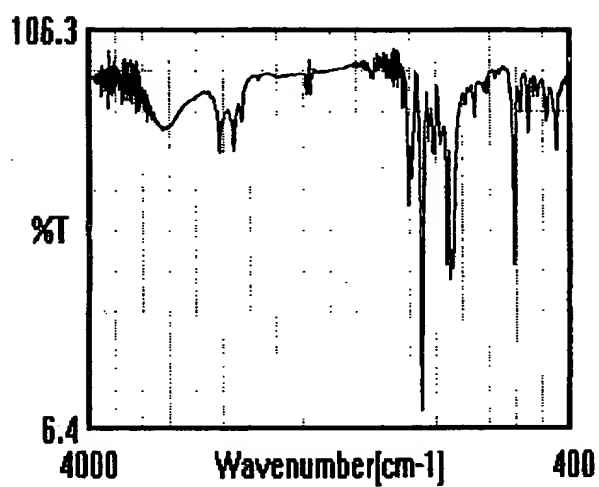
【図 1】



【図 3】



【図2】



フロントページの続き

(51) Int. Cl. <sup>7</sup>

識別記号

F I

テ-マコ-ド (参考)

C 0 7 D 263/48

C 0 7 D 263/48

4 C 0 5 6

263/58

263/58

4 C 2 0 4

265/38

265/38

4 H 0 0 6

271/10

271/10

277/82

277/82

279/22

279/22

307/66

307/66

333/36

333/36

333/66

333/66

C 0 9 K 11/06

C 0 9 K 11/06

6 2 0

6 2 0

6 3 5

6 3 5

6 4 5

6 4 5

6 5 5

6 5 5

H 0 5 B 33/14

H 0 5 B 33/14

B

33/22

33/22

B

Fターム(参考) 3K007 AB02 AB03 AB04 AB06 AB11  
CA01 CB01 DA01 DB03 EB00  
4C023 GA01  
4C033 AE03 AE13 AE17  
4C036 AA02 AA14-AA17  
4C055 AA01 BA01 CA52 CB04 CB10  
DA01 EA03  
4C056 AA01 AA02 AB01 AB02 AC02  
AC03 AC07 AD01 AD05 AE03  
BA11 CA09 CD02 EC12 FA14  
4C204 BB05 CB25 DB01 EB01 FB16  
GB01  
4H006 AA01 AA03 AB92 TA04 TB14